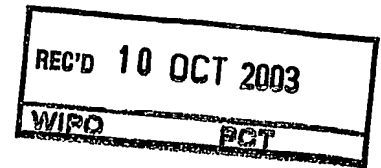


Rec'd PCT/PTO 28 JAN 2005

PCT/JP03/09511

22.08.03

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年 7月29日

出願番号
Application Number: 特願2002-220214
[ST. 10/C]: [JP2002-220214]

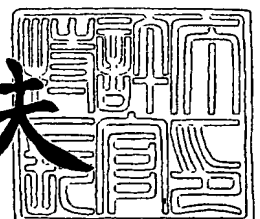
出願人
Applicant(s): 松下電器産業株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 9月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 2034340019

【提出日】 平成14年 7月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式
 会社内

 【氏名】 泉 伸太郎

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式
 会社内

 【氏名】 上木原 伸幸

【発明者】

 【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式
 会社内

 【氏名】 渡辺 勝

【特許出願人】

 【識別番号】 000005821

 【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100092794

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 松田 正道

 【電話番号】 06-6397-2840

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 009896

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9006027

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用膜電極接合体の製造方法、その製造装置、及び膜電極接合体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 走行する基材上に、第 1 の塗料を塗布することにより第 1 の触媒層を形成する第 1 の触媒層形成工程と、

前記第 1 の触媒層がウェット状態の間に、第 2 の塗料を、前記第 1 の触媒層に塗布することにより電解質層を形成する電解質形成工程と、

前記電解質層を乾燥させる乾燥工程と、

第 3 の塗料を、乾燥された前記電解質層に塗布することにより第 2 の触媒層を形成する第 2 の触媒層形成工程とを備え、

前記第 1 の触媒層及び前記第 2 の触媒層は、それぞれ水素極及び酸素極である、またはそれぞれ酸素極及び水素極である燃料電池用膜電極接合体の製造方法。

【請求項 2】 前記乾燥工程は、乾燥温度が 2 0 ℃以上 1 5 0 ℃以下の範囲である請求項 1 記載の燃料電池用膜電極接合体の製造方法。

【請求項 3】 前記乾燥工程は、熱風出口部と前記電解質層との距離が 1 0 m m 以上 5 0 0 m m 以下の範囲にある請求項 1 または 2 に記載の燃料電池用膜電極接合体の製造方法。

【請求項 4】 前記乾燥工程は、前記熱風出口部から 1 0 m m の場所の熱風の流速が秒速 1 m 以上 2 0 m 以下の範囲にある請求項 3 記載の燃料電池用膜電極接合体の製造方法。

【請求項 5】 走行する基材上に、第 1 の塗料を塗布することにより第 1 の触媒層を形成する第 1 の触媒層形成手段と、

前記第 1 の触媒層がウェット状態の間に、第 2 の塗料を、形成された前記第 1 の触媒層に塗布することにより電解質層を形成する電解質形成手段と、

前記電解質層を乾燥させる乾燥手段と、

第 3 の塗料を、乾燥された前記電解質層に塗布することにより第 2 の触媒層を形成する第 2 の触媒層形成手段とを備え、

前記第 1 の触媒層及び前記第 2 の触媒層は、それぞれ水素極及び酸素極である

、またはそれぞれ酸素極及び水素極である燃料電池用膜電極接合体の製造装置。

【請求項 6】 水素極と、

前記水素極上に形成された電解質層と、

前記電解質層上に形成された酸素極とを備え、

前記酸素極の方が前記水素極よりも前記電解質層に接触する面積が大きい燃料電池用膜電極接合体。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子型燃料電池に使用される燃料電池用膜電極接合体の製造方法、その製造装置、及び膜電極接合体に関するものである。

【0 0 0 2】

【従来技術】

燃料電池は、水素を含む燃料ガスと酸素等を含む酸化剤ガスとを電気化学的に反応させて電力エネルギーを発生させるものである。燃料電池には、例えば磷酸型燃料電池、熔融炭酸塩型燃料電池、酸化物型燃料電池、及び高分子電解質型燃料電池などがある。

【0 0 0 3】

これらの燃料電池のうち、高分子電解質型燃料電池について説明する。高分子電解質型燃料電池を構成する膜電極接合体は、電解質層と、その電解質層の表裏にある触媒層とから成り、触媒層の一方を水素極、他方を酸素極と呼ぶ。

【0 0 0 4】

水素極に水素を、酸素極に酸素を供給することにより、水素は水素極の触媒によって水素イオンとなって電解質層内を移動し、酸素極の触媒反応により酸素と反応して水になる。この過程で酸素極から水素極へ電子が移動する。

【0 0 0 5】

このような膜電極接合体は、次のようにして作成される。

【0 0 0 6】

すなわち、図 4 ～図 7 に従来膜電極接合体の製造方法を示す。この製造方法

を以下従来の印刷方式と呼ぶ。

【0007】

まず、従来の印刷方式では、図4に示すように押し出し成型機17で溶融した高分子電解質15を基材9a上に帯状に塗布することによって、基材9aと基材9a上に形成された高分子電解質15とからなる高分子電解質のシートが押し出し成形される。

【0008】

次に、図5に示すように、基材9bと基材9b上に形成された第一の触媒層201（水素極）とからなる第一の触媒層のシートを必要な形状に裁断する。なお、この第一の触媒層のシートは、図4で説明した押し出し成形と同様の製造工程で成形したものである。なお、第一の触媒層201は水素極として機能するものである。

【0009】

さらに、図6に示すように、図5の工程で裁断した第一の触媒層のシートを図4の工程で成形した高分子電解質のシートに熱転写する。すなわち、基材9a上に形成された高分子電解質301に、裁断した第一の触媒層のシートを熱転写ロールにより押圧及び加熱する。つまり、高分子電解質層301に第一の触媒層201が熱転写ロールにより押圧され加熱される。このように熱転写ロール18によって加熱及び押圧することによって、高分子電解質層301に第一の触媒層201が熱転写される。

【0010】

最後に、図7に示すように、図6で熱転写された高分子電解質層301及び第一の触媒層201を反転し、高分子電解質のシートの基材9aを除去する。そして、高分子電解質層301上に印刷用金型19を配置し、印刷用金型19に第二の触媒層401用の塗料を充填し、過剰な塗料を印刷用刃先20を掃引することにより除去する。このように第二の触媒層401は印刷により形成される。なお、第二の触媒層401は酸素極として機能するものである。なお、第二の触媒層401の塗料は、カーボンブラックの微粒子に貴金属を担持したカーボン粉末を触媒体とし、前記触媒体に結合剤樹脂と溶媒とを混合したものをを用いる。

【 0 0 1 1 】

このように上記図 4 から図 7 までの工程を経ることによって第一の触媒層 2 0 1、高分子電解質層 3 0 1、及び第二の触媒層 4 0 1 から構成される膜電極接合体が製造される。

【 0 0 1 2 】

なお、上記の印刷方式では、第一の触媒層のシートを高分子電解質のシートに熱転写してから、高分子電解質のシートに第二の触媒層 4 0 1 を印刷するとして説明した。すなわち、第一の触媒層 2 0 1 を転写により形成し、第二の触媒層 4 0 1 を印刷により形成するとして説明したが、これに限らず、第一の触媒層 2 0 1 及び第二の触媒層 4 0 1 をともに転写により形成してもよく、またともに印刷により形成しても構わない。また、第一の触媒層 2 0 1 及び第二の触媒層 4 0 1 を形成する順序はいずれを先に形成しても構わず、その場合第一の触媒層 2 0 1 及び第二の触媒層 4 0 1 をそれぞれ転写及び印刷のいずれの方法により形成しても構わない。

【 0 0 1 3 】

次に、上記印刷方式とは異なった膜電極接合体の製造方法について、図 8 を参照して説明する。なお、この製造方法を以下従来のロール方式と呼ぶ。図 8 において、1 はノズルであり、5 は塗料供給装置であり、9 は基材であり、1 0 はロールであり、1 1 は第一の触媒層用の塗料である。また塗料供給装置 5 はタンク 5 0 1 及びポンプ 5 0 2 から構成される。第一の触媒層の塗料 1 1 は、カーボンブラックの微粒子に貴金属を担持したカーボン粉末を触媒体とし、前記触媒体に結合剤樹脂と溶媒とを混合したものをを用いる。

【 0 0 1 4 】

次に、従来のロール方式の動作を説明する。

【 0 0 1 5 】

タンク 5 0 1 には第 1 の触媒層用の塗料 1 1 が貯蔵されている。第 1 の触媒層用塗料 1 1 は、ポンプ 5 0 2 を経由してノズル 1 から、ロール 1 0 上を走行するフープ状の基材 9 上に帯状に連続的に塗布される。なお、第 1 の触媒層用塗料 1 1 を間欠的に基材 9 上に塗布してもよい。このように第一の触媒層用塗料 1 1 が

塗布された基材 9 は、乾燥後に一旦巻き取られる。このようにして基材 9 上の第一の触媒層が形成される。

【0016】

次に、巻き取られた基材 9 の第 1 の触媒層が形成された面に図 8 と同様の工程により電解質層用の塗料を帯状に塗布する。そして、電解質層用の塗料が塗布された基材 9 は、乾燥後に一旦巻き取られる。このようにして基材 9 上に第一の触媒層及び電解質層の 2 層が形成される。

【0017】

さらに、巻き取られた基材 9 の電解質層が形成された面に図 8 と同様の工程により第二の触媒層用の塗料を帯状に塗布する。そして、第二の触媒層用の塗料が塗布された基材 9 は、乾燥後に一旦巻き取られる。このようにして基材 9 上に第一の触媒層、電解質層、及び第二の触媒層の 3 層が形成される。

【0018】

最後に、基材 9 上に形成された第 1 の触媒層、電解質層、及び第二の触媒層を所定の形状に裁断することにより膜電極接合体が得られる。

【0019】

なお、図 8 ではノズル 1 を用いて膜電極接合体を製造したが、ノズル 1 の代わりに、図 9 に示すように印刷用刃先 20 及び液溜まりの底を形成する板 21 及び塗膜の厚みを調整する刃先 22 を用いることも出来る。なお、図 9 の方法はノズル 1 の代わりに印刷用刃先 20、板 21、刃先 22 を用いること以外は、図 8 の製造方法と同様であるので説明を省略する。

【0020】

また、従来の膜電極接合体を用いて発電を行う際、第二の触媒層（酸素極）よりも第一の触媒層（水素極）の方がより多くの反応が起こる。従って、第一の触媒層（水素極）と第二の触媒層（酸素極）とで触媒の量が同じ場合には、第一の触媒層（水素極）で発生される水素イオンが余剰になり、効率が悪い。このため、第一の触媒層（水素極）よりも第二の触媒層（酸素極）の方が触媒となる白金などの貴金属を多く含ませたり、あるいは、第一の触媒層（水素極）よりも第二の触媒層（酸素極）の厚みを厚くする等の工夫がなされていた。

【 0 0 2 1 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、従来の印刷方式及び従来のロール方式では、第一の触媒層、電解質層、及び第二の触媒層の各層を個別に塗布して形成するため生産性が低いという課題がある。

【 0 0 2 2 】

また、従来のロール方式では、第一の触媒層を完全に乾燥させてから巻き取っていた。第一の触媒層を巻き取る前に、第一の触媒層を完全に乾燥させた場合、第一の触媒層内に多数の空隙ができ、多孔度の高い層を形成する。従って、第一の触媒層の上に電解質層の原料となる塗料を塗布するとき、第一の触媒層内に形成された空隙内に電解質層の塗料が浸入し、その結果、電気的性質が悪くなるという結果が出るがあった。

【 0 0 2 3 】

すなわち、従来のロール方式では、第一の触媒層を乾燥させることによって形成された空隙内に電解質層の塗料が進入して電気的性質が悪くなるという課題がある。

【 0 0 2 4 】

また、従来のロール方式では、電解質層の原料となる塗料と第二の触媒層の原料となる塗料を同時に塗布した場合、前記電解質層の原料となる塗料が流動し、電解質層の膜厚が乱れたり、また、第一の触媒層と第二の触媒層とが接触したりして、その結果、電気的性質が悪くなるという結果がでることがあった。すなわち、第二の触媒層の原料となる塗料に比べて電解質層の原料となる塗料は粘度が低い。従って、電解質層の原料となる塗料は、第二の触媒層の原料となる塗料より流動しやすい。このことにより、電気的性質が悪くなる。

【 0 0 2 5 】

すなわち、従来のロール方式で、電解質の原料となる塗料と第二の触媒層の原料となる塗料とを同時に塗布することは、電気的性質が悪くなるので不可能であるという課題がある。

【 0 0 2 6 】

また、従来の膜電極接合体では、第一の触媒層より第二の触媒層の方が白金などの貴金属を多く含む工夫や、第一の触媒層より第二の触媒層の方が厚みを厚くするなどの工夫がなされているものの、膜電極接合体の内部抵抗をより小さくしたいという要望がある。

【0027】

すなわち、従来よりも膜電極接合体の内部抵抗をより低くしたいという課題がある。

【0028】

本発明は、上記課題を考慮し、燃料電池の生産性と性能を著しく向上する燃料電池用膜電極接合体の製造方法、燃料電池用膜電極接合体の製造装置、及び膜電極接合体を提供することを目的とするものである。

【0029】

すなわち、本発明は、上記課題を考慮し、生産性が高い燃料電池用膜電極接合体の製造方法、及び燃料電池用膜電極接合体の製造装置を提供することを目的とするものである。

【0030】

また、本発明は、上記課題を考慮し、第一の触媒層に形成された空隙内に電解質層の塗料が進入して電氣的性質が悪くなることのない燃料電池用膜電極接合体の製造方法、及び燃料電池用膜電極接合体の製造装置を提供することを目的とするものである。

【0031】

また、本発明は、上記課題を考慮し、電解質の原料となる塗料と第二の塗料の原料となる塗料とを同時に塗布しても、電氣的性質が悪くならない燃料電池用膜電極接合体の製造方法、及び燃料電池用膜電極接合体の製造装置を提供することを目的とするものである。

【0032】

また、本発明は、上記課題を考慮し、従来よりも膜電極接合体の内部抵抗がより低い膜電極接合体を提供することを目的とするものである。

【0033】

【課題を解決するための手段】

上述した課題を解決するために、第1の本発明は、走行する基材上に、第1の塗料を塗布することにより第1の触媒層を形成する第1の触媒層形成工程と、

前記第1の触媒層がウェット状態の間に、第2の塗料を、前記第1の触媒層に塗布することにより電解質層を形成する電解質形成工程と、

前記電解質層を乾燥させる乾燥工程と、

第3の塗料を、乾燥された前記電解質層に塗布することにより第2の触媒層を形成する第2の触媒層形成工程とを備え、

前記第1の触媒層及び前記第2の触媒層は、それぞれ水素極及び酸素極である、またはそれぞれ酸素極及び水素極である燃料電池用膜電極接合体の製造方法である。

【0034】

また、第2の本発明は、前記乾燥工程は、乾燥温度が20℃以上150℃以下の範囲である第1の本発明の燃料電池用膜電極接合体の製造方法である。

【0035】

また、第3の本発明は、前記乾燥工程は、熱風出口部と前記電解質層との距離が10mm以上500mm以下の範囲にある第1または2の本発明の燃料電池用膜電極接合体の製造方法である。

【0036】

また、第4の本発明は、前記乾燥工程は、前記熱風出口部から10mmの場所の熱風の流速が秒速1m以上20m以下の範囲にある第3の本発明の燃料電池用膜電極接合体の製造方法である。

【0037】

また、第5の本発明は、走行する基材上に、第1の塗料を塗布することにより第1の触媒層を形成する第1の触媒層形成手段と、

前記第1の触媒層がウェット状態の間に、第2の塗料を、形成された前記第1の触媒層に塗布することにより電解質層を形成する電解質形成手段と、

前記電解質層を乾燥させる乾燥手段と、

第3の塗料を、乾燥された前記電解質層に塗布することにより第2の触媒層を

形成する第 2 の触媒層形成手段とを備え、

前記第 1 の触媒層及び前記第 2 の触媒層は、それぞれ水素極及び酸素極である、またはそれぞれ酸素極及び水素極である燃料電池用膜電極接合体の製造装置である。

【 0 0 3 8 】

また、第 6 の本発明は、水素極と、

前記水素極上に形成された電解質層と、

前記電解質層上に形成された酸素極とを備え、

前記酸素極の方が前記水素極よりも前記電解質層に接触する面積が大きい燃料電池用膜電極接合体である。

【 0 0 3 9 】

すなわち、上述の目的を達成するために、連続走行する基材上に貴金属を担持する固形物と水素イオン導電性を有する樹脂を含む塗料を帯状に塗布し、同時に前記樹脂を主成分とする塗料を帯状に塗布することで、前記基材上に第一の触媒層と高分子電解質層からなる二層積層帯を形成し、次に前記固形物と前記樹脂を含む塗料を帯状に塗布することで、前記二層積層帯上に第二の触媒層を形成し、全体として三層積層帯を作製することができ、次に前記三層積層帯を打ち抜き三層積層体を作成する膜電極接合体の製造方法であって、前記第一の触媒層の幅 $W1$ 、前記第二の触媒層の幅 $W2$ が、 $W1 \leq W2$ となるよう塗布し、前記二層積層帯を形成後かつ前記第二の触媒層を形成前に前記電解質層を乾燥させるための乾燥手段により、前記二層積層帯の形成直後のウェット厚みを 100% として、前記二層積層帯のウェット厚みを 10～90% とし、また、前記第一の触媒層と前記第二の触媒層は、前記基材の進行方向で互いの外縁が重なる矩形形状を形成するように塗料を間欠的に塗布し、前記第一の触媒層の前記走行方向の長さ $L1$ 、前記第二の触媒層の前記走行方向の長さ $L2$ が、 $L1 \leq L2$ と成るように塗布する。

【 0 0 4 0 】

次に前記乾燥手段による乾燥温度は 20℃ 以上 150℃ 以下の範囲とし、前記乾燥手段の熱風出口部と前記二層積層帯表面との距離を 10mm 以下 500mm

以上の範囲とする。

【0041】

【発明の実施の形態】

以下に、本発明の実施の形態を図面を参照して説明する。

（実施の形態1）

まず、実施の形態1について説明する。

【0042】

図1に、本実施の形態で用いる膜電極接合体の概略構成図を示す。また、図3にPP'における断面図を示す。9は膜電極接合体を連続して作成する際に用いるテープ状の基材であり、この上に各層が形成される。

【0043】

201は第一の触媒層であり基材9上に形成される。また、301は高分子電解質層であり、第一の触媒層201の上に形成される。さらに、401は第二の触媒層であり、高分子電解質層301の上に形成される。

【0044】

なお、第1の触媒層201は水素極として用いられるものであり、第2の触媒層401は酸素極として用いられるものである。

【0045】

本実施の形態で用いる膜電極接合体は、次のように作成する。

【0046】

すなわち、ポリエチレンテレフタレート製またはポリプロピレン製の基材9は連続して走行している。そして、連続走行している基材9の上に白金や白金合金等の触媒を担持する貴金属担持カーボン粉末、水素イオン導電性を有するフッ素系樹脂、および溶媒とが混合された塗料をノズルのスリットを通して押し出して帯状に塗布して、第一の触媒層201を形成する。

【0047】

ここでカーボン粉末としては、アセチレンブラック、ケッチェンブラック等の導電性カーボンブラックが使用できる。

【0048】

また、フッ素系樹脂としては、ポリエチレンフタレート、ポリフッ化ビニリデン、ポリフッ化ビニリデンーヘキサフルオロプロピレン共重合体、パーフルオロスルホン酸等の単独または複数種が使用できる。

【0049】

次に、溶媒としては水、エチルアルコール、メチルアルコール、イソプロピルアルコール、エチレングリコール、メチレングリコール、プロピレングリコール、メチルエチルケトン、アセトン、トルエン、キシレン、nメチル-2-ピロリドン等の単独または複数種が使用できる。また、溶媒の添加量は、カーボン粉末を100として重量比で10～3000とするのが良い。

【0050】

第一の触媒層201の形成と同時に、水素イオン導電性を有するフッ素樹脂を主成分とする塗料をノズルのスリットを通して押し出して第一の触媒層201上に帯状に塗布して、第一の触媒層201と高分子電解質301からなる二層積層帯を形成する。第一の触媒層201がウェット状態の間に高分子電解質層301を形成するので、高分子電解質層301の塗料が第一の触媒層201に浸透することがない。

【0051】

次に、第一の触媒層201と高分子電解質層301からなる二層積層帯を乾燥手段で乾燥することにより、高分子電解質層301の表面を乾固にする。

【0052】

次に、貴金属担持カーボン粉末、水素イオン導電性を有する樹脂、および溶媒とが混合された塗料をノズルのスリットを通して押し出して帯状に塗布して、高分子電解質層301上に第二の触媒層401を形成する。第一の触媒層201と第二の触媒層401の平均膜厚は3～160 μ mであり、高分子電解質層の平均膜厚は6～200 μ mの範囲とするのが良い。

【0053】

こうして、三つの層が積層された帯状物（以下、三層積層帯という）を作成する。ここで塗料を塗布する際には、第一の触媒層201の幅W1、第二の触媒層401の幅W2が $W1 \leq W2$ を満たす必要がある。すなわち、第一の触媒層20

1 の幅よりも第二の触媒層 4 0 1 の幅の方が小さくないように第一の触媒層 2 0 1 及び第二の触媒層 4 0 1 を形成する必要がある。

【0 0 5 4】

最後に、三層積層帯を基材 9 から剥がし、所定の形状に打ち抜いて三層構造の三層積層体、即ち膜電極接合体を作成する。

【0 0 5 5】

図 2 に、本実施の形態で用いる膜電極接合体の製造装置の概略図を示す。まず、膜電極接合体の製造装置の構成を説明する。1、2 はそれぞれ基材 9 上に塗料を吐出するノズルであり、1 1 は第一の触媒層用の塗料であり、1 2 は高分子電解質用の塗料であり、1 3 は第二の触媒層用の塗料であり、2 0 2、3 0 2、4 0 2 はそれぞれスリットであり、2 0 3、3 0 3、4 0 3 はそれぞれマニホールドであり、3 a、3 b はそれぞれサックバック装置であり、4 は乾燥手段であり、5、6、7 はそれぞれ塗料供給装置である。

【0 0 5 6】

ここで、サックバック装置 3 a、3 b は、それぞれノズル 1、2 の各スリット 2 0 2、3 0 2、4 0 2 から間欠的に塗料を塗布するために各マニホールド 2 0 3、3 0 3、4 0 3 内の塗料を吸引する手段である。

【0 0 5 7】

乾燥手段 4 は、二層同時に塗布形成された第一の触媒層 2 0 1 と高分子電解質層 3 0 1 との表面を乾燥させるものである。

【0 0 5 8】

また、塗料供給装置 5 は、マニホールド 2 0 3 内に塗料を供給するものであり、塗料貯溜用のタンク 5 0 1、塗料の送液ポンプ 5 0 2、塗料の送液方向の切替えを行う三方弁 5 0 3 から構成される。

【0 0 5 9】

塗料供給装置 7 も同様の構成であり、塗料供給装置 6 は、三方弁を備えない以外は、塗料供給装置 5、7 と同様の構成である。

【0 0 6 0】

また、1 0 は金属製のロールであり、基材 9 を連続して移送する手段である。

【0061】

次にこのような本実施の形態の膜電極接合体の製造装置の動作を説明する。

【0062】

本実施の形態で用いた膜電極接合体の製造装置は、ノズル1にスリット202、302、マニホールド203、303、塗料供給装置5、6を備えており、ノズル1で第一の触媒層201と高分子電解質層301を同時に塗布し、ノズル2にスリット402、マニホールド403、塗料供給装置7を備えており、ノズル2により同時に塗布された第一触媒層201と高分子電解質301の上に第二の触媒層401を塗布する。

【0063】

ここで、第一の触媒層201が基材9に整列する矩形形状に形成されるように、一定間隔で三方弁503を切替え、ノズル1への塗料供給を停止すると同時に、塗料を吸引するサックバック装置3aを作動させ、ノズル1内部の塗料11を吸引しながら塗料を間欠的に供給する。

【0064】

また、高分子電解質層301は、第1の触媒層201がウェット状態の間に塗布されるので、高分子電解質層301が第1の触媒層201の内部に浸透して電気的特性を劣化させることはない。

【0065】

さらに第二の触媒層401は、第一の触媒層201と同様にして、第一の触媒層201の矩形形状と外縁が重なるように、第一の触媒層201と同様にして塗料13を間欠的に塗布する。

【0066】

また、高分子電解質層301はマニホールド303とスリット302に塗料12を供給して帯状に連続的に塗布する。

【0067】

この際、第一の触媒層201の矩形形状における、基材9の進行方向の長さをL1とし、第二の触媒層401の矩形形状における、基材9の前記進行方向の長さをL2とすると、 $L1 \leq L2$ の条件を満たすように塗布する。すなわち、第二の

触媒層 4 0 1 の矩形形状における進行方向の長さが第 1 の触媒層 2 0 1 の矩形形状における進行方向の長さより小さくないように塗布する。

【0 0 6 8】

なお、本実施の形態では、第一の触媒層 2 0 1 の幅 W_1 、第二の触媒層 4 0 1 の幅 W_2 が $W_1 \leq W_2$ を満たし、第一の触媒層 2 0 1 の矩形形状における、基材 9 の進行方向の長さを L_1 とし、第二の触媒層 4 0 1 の矩形形状における、基材 9 の前記進行方向の長さを L_2 とすると、 $L_1 \leq L_2$ の条件を満たすように塗布するとして説明したが要するに、第二の触媒層 4 0 1 の電解質層 3 0 1 に接触する面積が第一の触媒層 2 0 1 の電解質層 3 0 1 に接触する面積より大きいものでありさえすればよい。

【0 0 6 9】

本実施の形態の特徴は、ノズル 1 とノズル 2 の間に設置された乾燥手段 4 により、触媒層 2 0 1 と電解質層 3 0 1 とからなる二層積層帯の形成直後のウェット厚みを 1 0 0 % として、ウェット厚みが 2 0 ~ 9 0 % となるようにロール 1 0 上で乾燥し、その後第二の触媒層 4 0 1 を塗布し、全体で三層積層帯を形成することである。

【0 0 7 0】

すなわち、乾燥手段 4 としては、例えば熱風送風機、赤外線ヒータ等が使用できる。その乾燥温度としては 2 0 °C 未満では乾燥効果は無く、1 5 0 °C 以上では第 1 の触媒層 2 0 1 が燃焼するため 2 0 °C ~ 1 5 0 °C の範囲が望ましい、乾燥手段 4 の熱源と二層積層帯表面との距離は熱風送風機では、1 0 mm 未満では風で塗膜の表面が乱れ、5 0 0 mm より長い場合には熱が周囲に拡散されるため 1 0 mm 以上でありかつ 5 0 0 mm 以下である範囲が望ましい。また、熱風送風機の熱風吹き出し口から 1 0 mm 地点の熱風の流速が 1 m / s から 2 0 m / s の範囲にあることが望ましい。

【0 0 7 1】

赤外線ヒータでは、熱源が二層積層帯表面に接触する事無く、赤外線が届く範囲であれば良いので赤外線ヒータから塗膜までの距離が 1 0 mm ~ 1 0 0 0 mm の範囲にあることが望ましい。

【0072】

なお、本実施の形態では、第一の触媒層 201 を第二の触媒層 401 より先に形成するとして説明したが、これに限らず、第二の触媒層 401 を第一の触媒層 201 より先に形成しても構わない。すなわち、水素極を形成してから酸素極を形成しても構わないし、酸素極を形成してから水素極を形成しても構わない。

【0073】

さらに、本実施の形態では、第一の触媒層 201 と電解質層 301 とを同時に形成するとして説明したが、これに限らない。第 1 の触媒層 201 がウェット状態にある間であれば、第 1 の触媒層 201 の形成後に電解質層 301 を形成しても構わない。

【0074】

なお、本実施の形態のノズル 1、スリット 202 は本発明の第 1 の触媒層形成手段の例であり、本実施の形態のノズル 1、スリット 302 は本発明の電解質層形成手段の例であり、本実施の形態のノズル 2、スリット 402 は本発明の第 2 の触媒層形成手段の例である。

【0075】

本実施の形態 1 の効果を以下にまとめて説明する。

【0076】

ノズル 1 とノズル 2 の間に設けた乾燥手段 4 を用い、ロール 10 の上で乾燥させる事により、第一の触媒層 201 と高分子電解質層 301 からなる二層積層帯内部に堆積していく熱はロール 10 に伝達されるため、電解質層 301 の表層近くのみ乾固される。従って第二の触媒層 401 は電解質層 301 に浸透することはできないため、接着強度が著しく強い、明瞭な界面が形成され、触媒層 301 にひび割れの発生しない膜電極接合体が得られる。

【0077】

また、第一の触媒層 201 はウェット状態にあるので、電解質層 301 が第一の触媒層 201 の内部に浸透することにより第一の触媒層 201 の電気的特性を劣化させることもない。

【0078】

さらに、第一の触媒層 201 が電解質層 301 に接触する面積よりも第二の触媒層 401 が電解質層 301 に接触する面積の方が大きいように構成したので、膜電極接続体の内部抵抗を小さくすることが出来る。

【0079】

このように、本実施の形態の膜電極接合体により作成される燃料電池の発電効率や寿命特性が著しく向上する。

【0080】

このように、本実施の形態によれば、各層の表面の平坦性に優れ、膜厚バラツキが小さくできる燃料電池用膜電極接合体の製造方法を提供することができる。

【0081】

【発明の効果】

以上説明したところから明らかなように、本発明は、燃料電池の生産性と性能を著しく向上する燃料電池用膜電極接合体の製造方法、燃料電池用膜電極接合体の製造装置、及び膜電極接合体を提供することが出来る。

【0082】

また、本発明は、生産性が高い燃料電池用膜電極接合体の製造方法、及び燃料電池用膜電極接合体の製造装置を提供することが出来る。

【0083】

また、本発明は、第一の触媒層に形成された空隙内に電解質層の塗料が進入して電気的性質が悪くなることがない燃料電池用膜電極接合体の製造方法、及び燃料電池用膜電極接合体の製造装置を提供することが出来る。

【0084】

また、本発明は、電解質の原料となる塗料と第二の塗料の原料となる塗料とを同時に塗布しても、電気的性質が悪くならない燃料電池用膜電極接合体の製造方法、及び燃料電池用膜電極接合体の製造装置を提供することが出来る。

【0085】

また、本発明は、従来よりも膜電極接合体の内部抵抗がより低い膜電極接合体を提供することが出来る。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施の形態 1 における膜電極接合体の概略図

【図 2】

本発明の実施の形態 1 における膜電極接合体の製造装置を示す概略図

【図 3】

本発明の実施の形態 1 における膜電極接合体の断面図

【図 4】

従来の印刷方式による膜電極接合体を製造する工程を説明する図

【図 5】

従来の印刷方式による膜電極接合体を製造する工程を説明する図

【図 6】

従来の印刷方式による膜電極接合体を製造する工程を説明する図

【図 7】

従来の印刷方式による膜電極接合体を製造する工程を説明する図

【図 8】

従来のロール方式による膜電極接合体を製造する工程を説明する図

【図 9】

従来のロール方式による膜電極接合体を製造する工程を説明する図

【符号の説明】

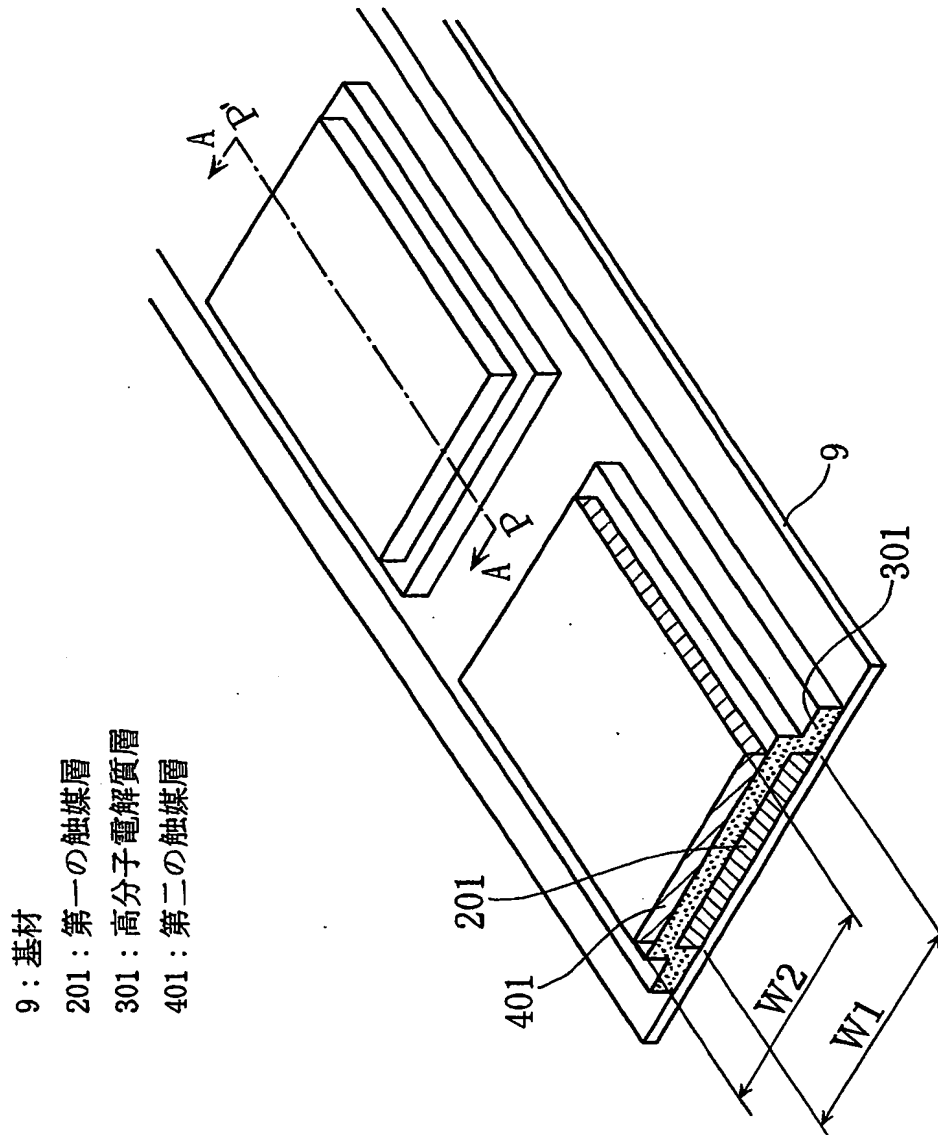
- 1、2 ノズル
- 3 a、3 b サックバック
- 4 乾燥手段
- 5、6、7 塗料供給装置
- 9、9 a、9 b 基材
- 10 ロール
- 11 第一の触媒層用の塗料
- 12 高分子電解質層用の塗料
- 13 第二の触媒層用の塗料
- 15 高分子電解質

- 16 押し出し成型用金型
- 17 押し出し成型機
- 18 熱転写ロール
- 19 印刷用金型
- 20 印刷用刃先
- 21 板
- 22 刃先
- 201 第一の触媒層
- 301 高分子電解質層
- 401 第二の触媒層
- 202、302、402 スリット
- 203、303、403 マニホールド
- 501、601、701 タンク
- 502、602、702 ポンプ
- 503、703 三方弁

【書類名】

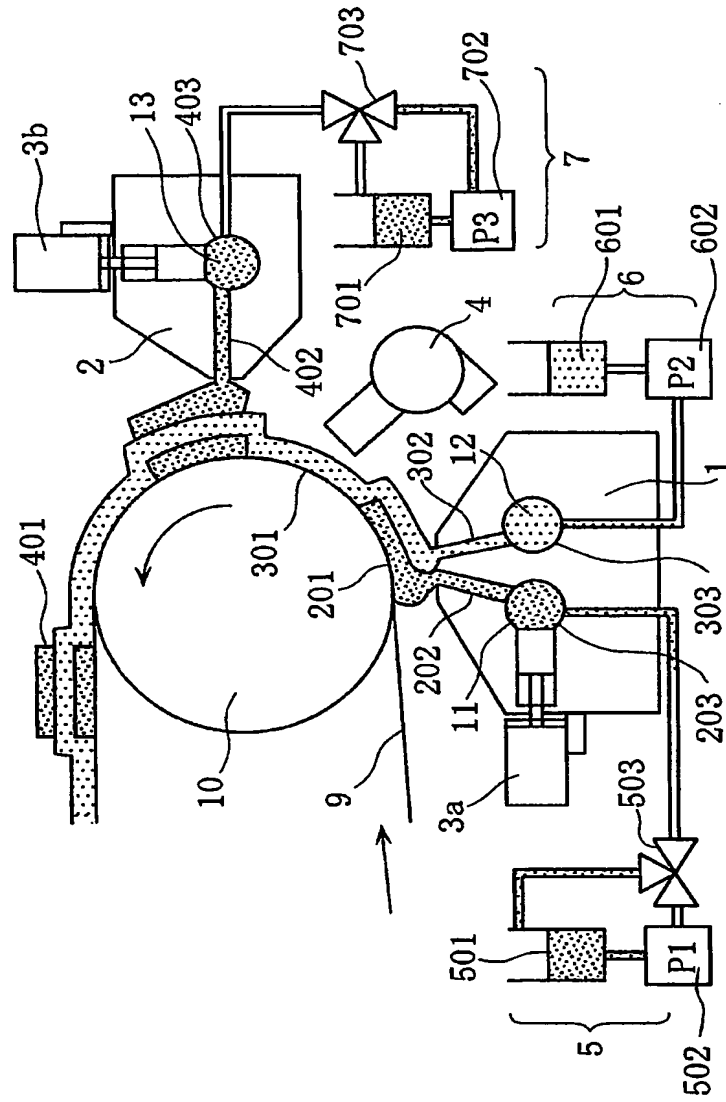
図面

【図1】

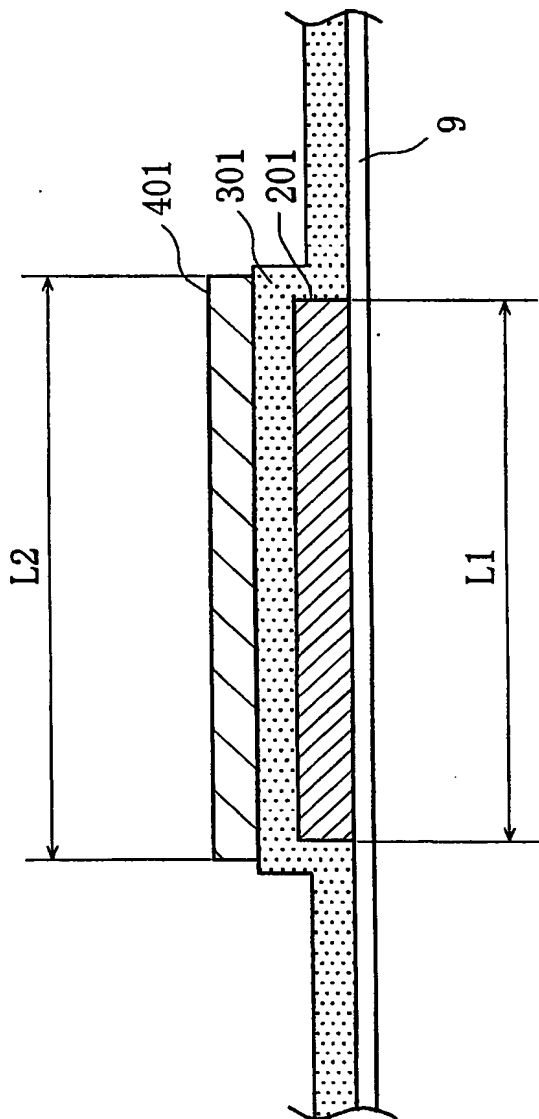


【図 2】

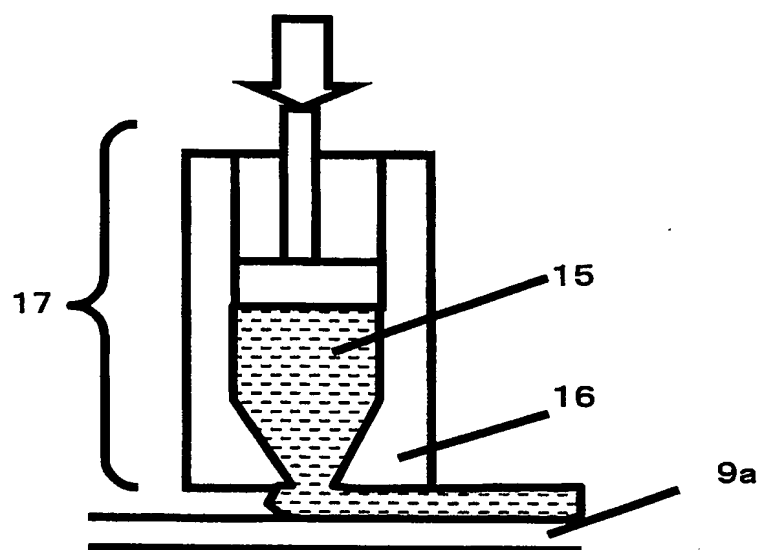
- | | | |
|-----------------|-----------------|-----------------------|
| 1, 2: ノズル | 11: 第一の触媒層用の塗料 | 202, 302, 402: スリット |
| 3a, 3b: サックバック | 12: 高分子電解質層用の塗料 | 203, 303, 403: マニホールド |
| 4: 乾燥手段 | 13: 第二の触媒層用の塗料 | 501, 601, 701: タンク |
| 5, 6, 7: 塗料供給装置 | 201: 第一の触媒層 | 502, 62, 702: ポンプ |
| 9: 基材 | 301: 高分子電解質層 | 503, 703: 三方弁 |
| 10: ロール | 401: 第二の触媒層 | |



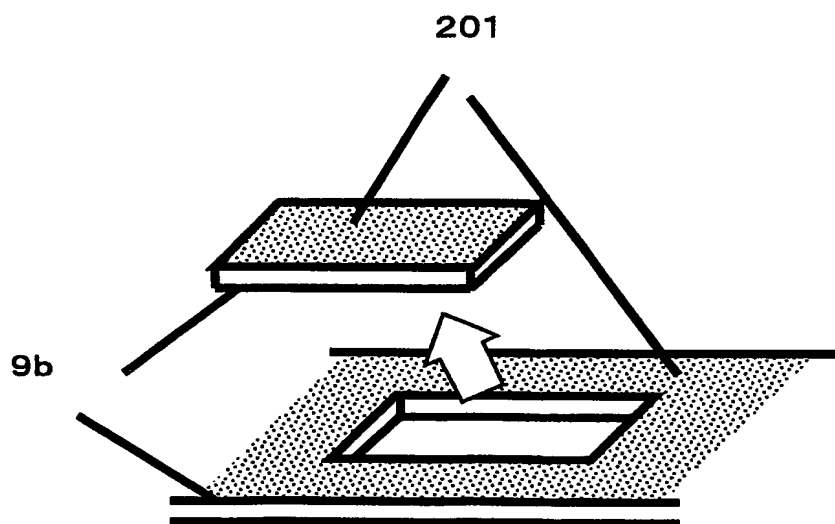
【図3】



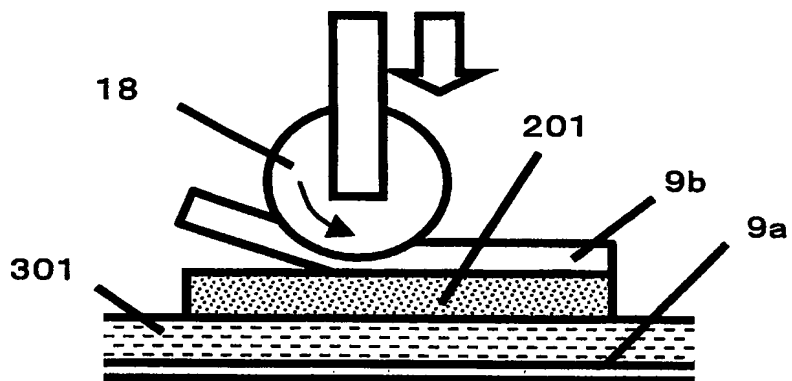
【図 4】



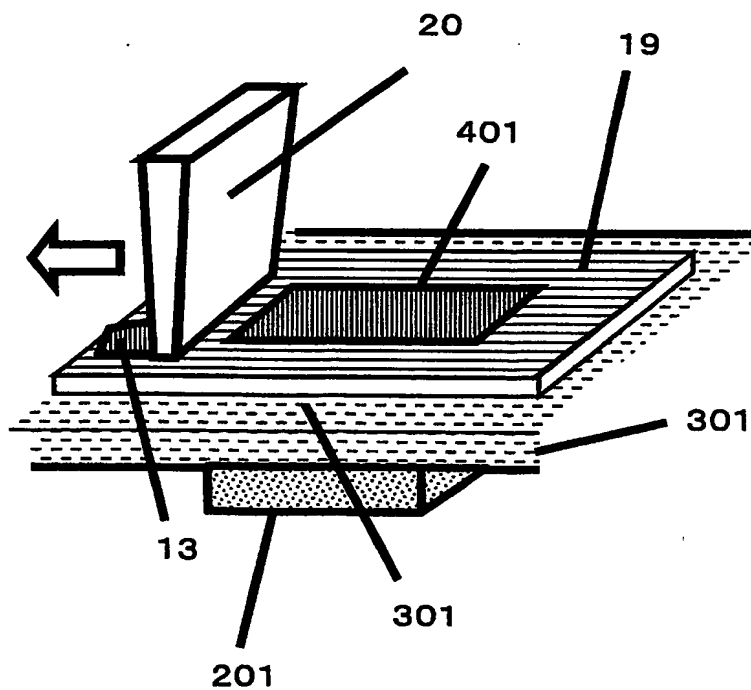
【図 5】



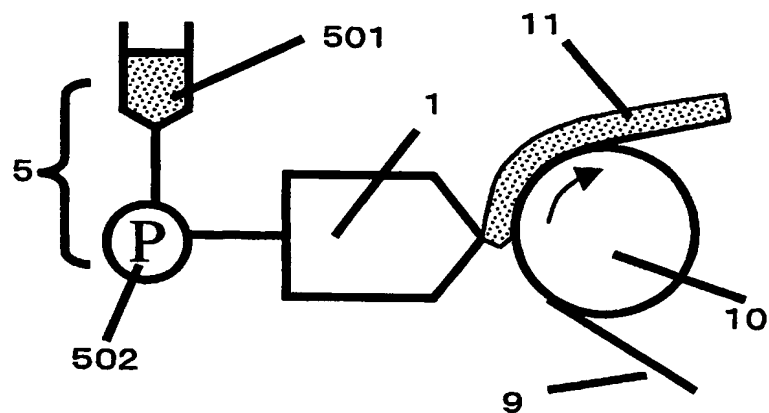
【図6】



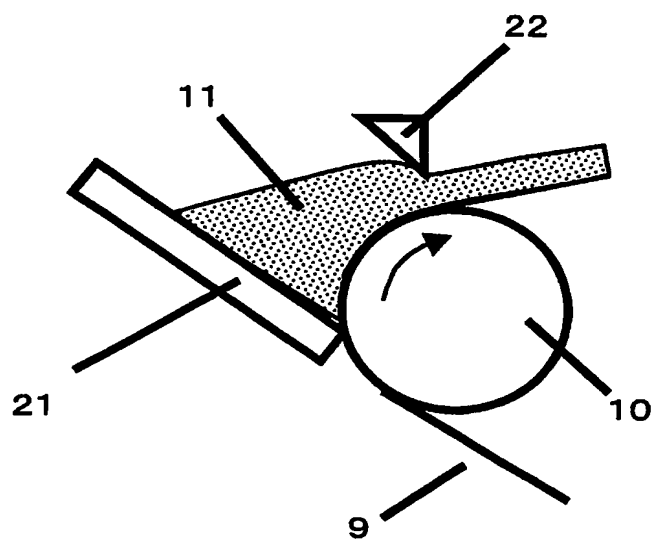
【図7】



【図8】



【図9】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池の生産性と性能を著しく向上する燃料電池用膜電極接合体の製造方法を提供すること。

【解決手段】 走行する基材 9 上に、貴金属を担持した第 1 の塗料を塗布することにより第 1 の触媒層 201 を形成する第 1 の触媒層形成工程と、第 1 の触媒層 201 がウェット状態の間に、水素イオン導電性を有する樹脂を含む第 2 の塗料を形成された第 1 の触媒層 201 に塗布することにより電解質層 301 を形成する電解質形成工程と、形成された電解質層 301 を乾燥させる乾燥工程と、貴金属を担持した第 3 の塗料を乾燥された電解質層 301 に塗布することにより第 2 の触媒層 401 を形成する第 2 の触媒層形成工程とを備える。

【選択図】 図 2

特願 2002-220214

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000005821]

1. 変更年月日

1990年 8月28日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府門真市大字門真1006番地

氏 名

松下電器産業株式会社